

中低速 C^{3+} 与 He, Ne, Ar 原子相互作用过程中 单电子转移绝对截面的测量^{*}

刘会平^{1,2)} 陈熙萌^{1)†} 刘兆远¹⁾ 丁宝卫¹⁾ 邵剑雄¹⁾ 崔莹¹⁾ 鲁彦霞¹⁾ 高志民¹⁾
刘玉文¹⁾ 杜娟¹⁾ 孙光智¹⁾ 席发元¹⁾ 王兴安¹⁾ 娄凤君¹⁾

1) 兰州大学核科学与技术学院, 兰州 730000)

2) 西安交通大学能源与动力工程学院, 西安 710049)

(2007 年 12 月 24 日收到, 2008 年 6 月 6 日收到修改稿)

实验测量了 $1.7v_0$ — $4.2v_0$ (v_0 为玻尔速度, $v_0 = 2.19 \times 10^8$ cm/s) 的 C^{3+} 与 He, Ne, Ar 原子碰撞过程中单电子转移绝对截面. 将实验结果与多体经典轨道蒙特卡罗模拟计算结果做了比较, 发现测量结果与多体经典轨道蒙特卡罗模拟计算结果在趋势上相符. 当入射离子速度在 $1.7v_0$ — $2.0v_0$ 时, 因多体经典轨道蒙特卡罗方法计算时不能考虑多电子关联态俘获和极化效应的影响, 实验值大于计算值. 当入射离子速度在 $2.2v_0$ — $4.2v_0$ 时, 由于被俘获电子对入射离子的不完全屏蔽, 加上电子间的动态关联及有效电荷的影响, 实验结果先与多体经典轨道蒙特卡罗计算结果符合很好, 而后逐渐大于计算值. 此外, 还根据转移电离与单电子俘获的截面比简单分析了转移电离机制.

关键词: 离子-原子碰撞, 单电子转移, 绝对截面

PACC: 3470

1. 引言

在离子与原子碰撞过程中, 转移电离一直受到人们的关注. 近几十年来, 国内外开展了许多有关转移电离的反应机制及其对电子转移反应贡献的实验研究^[1-6], 但因条件限制这些实验只能给出某一反应总的绝对截面, 而能给出微分截面的实验却很少, 且大多采用高电荷态离子入射 He 靶, 实验能区也趋于高能和低能两极化. 因为在高能和低能条件下, 离子与原子碰撞过程中的反应道相对较少, 反应机制也相对单一, 理论计算时可以忽略俘获概率或电离概率, 在很大程度上简化理论计算. 随着实验技术的发展, 人们对离子-原子碰撞的研究也更加深入, 不仅可以用反应中电子的能量、散射离子的角分布研究反应过程, 还可以用反冲离子的动量以及微分截面揭示多体动力学, 获取原子(分子)的结构信息, 研究转移电离的机制^[7-10].

本文给出了中低能区(对于 He 原子和 Ne 原子, 入射离子速度 $v = 2.2v_0$ — $4.2v_0$, 其中玻尔速度

$v_0 = 2.19 \times 10^8$ cm/s; 对于 Ar 原子, 入射离子速度 $v = 1.7v_0$ — $4.2v_0$) C^{3+} 与 He, Ne, Ar 原子碰撞过程中的单电子转移截面. 将实验测量截面与多体经典轨道蒙特卡罗 (nCTMC) 计算结果作了比较, 并对此进行了分析. 还根据转移(多)电离与单电子俘获的截面比简单分析了 C^{3+} 与 He, Ne, Ar 原子碰撞过程中转移(多)电离机制.

2. 实验装置和方法

实验是在兰州大学 2×1.7 MV 串列加速器的离子-原子碰撞实验终端上完成的. 由加速器产生特定能量的 C^{3+} 经分析磁铁选择后经过相距 1.5 m 的两级准直光阑进入靶室, 在靶室的中心位置与气体靶原子发生碰撞. 各种价态的散射离子经横向静电场偏转, 飞行一段时间后由位置灵敏微通道板探测器记录各价态散射离子强度. 靶气体被碰撞后产生的反冲离子经静电加速后引出, 经过无场漂移管飞行一段距离后由微通道板探测器探测. 反冲离子探测

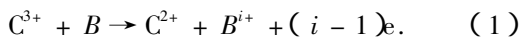
^{*} 国家重大基础研究专项基金(批准号: 2002CCA00900)和国家自然科学基金(批准号: 10704030)资助的课题.

[†] E-mail: chenxm@lzu.edu.cn

器输出信号作为时间-脉冲幅度转换器(TAC)的起始信号,由同一碰撞事件产生的散射离子信号经延迟作为终止信号.然后采用飞行时间-散射离子位置灵敏符合技术测量,并配以MPA-3型多参数获取系统记录每次碰撞的符合事件,形成二维相关物理事件符合谱.由于TAC总的时门宽小于散射离子平均脉冲周期,可以确定在此时间内得到的是同一碰撞事件的符合计数.

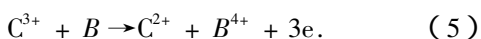
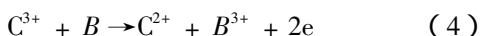
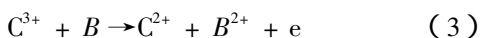
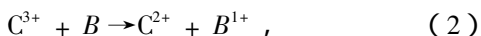
靶气体选择的是同位素纯度高的气体,靶室压力为 3.6×10^{-3} Pa,注入靶气体的针孔内径为 1 mm,在进气道上装有流量控制器,保证进气速度恒定.出气口距束流中心垂直高度为 3 mm,下面正对分子泵.反冲离子所加引出电压的阴极网格较疏,估算传输效率为 80%.实验采用了 1000 V 的引出电场,没有二级加速电场.实验过程中光阑开得很小,碰撞区束斑面积大约在 0.2 mm^2 以下.因此,实验过程中单次碰撞条件应该满足.有关实验装置和方法的详细描述见文献 [11, 12].

C^{3+} 与 He, Ne, Ar 原子碰撞过程中单电子转移反应式表示如下:



这里 B 代表 He, Ne, Ar 原子.对于 He 原子, $i = 1, 2$; 对于 Ne 原子和 Ar 原子, $i = 1, 2, 3, 4$.

在本文实验的能区, C^{3+} 与 He, Ne, Ar 原子碰撞时单电子转移反应包括以下几个反应过程:



(2) 式为单电子俘获(SC)过程 (3) 式为转移单电离(TI-1)过程 (4) 式为转移双电离(TI-2)过程 (5) 式为转移三电离(TI-3)过程.

根据实验测量的 C^{3+} 与 He, Ne, Ar 原子碰撞过程中单电子转移反应的符合性事件计数,将测量数据归一化到总的单电子转移截面^[4]后,得到了各出射道的绝对截面.

单电子转移各出射道绝对截面 σ_{32}^i 的计算公式如下:

$$\sigma_{32}^i = \frac{n_{32}^i / \eta^i}{INLT}, \quad (6)$$

式中 n_{32}^i 为单电子转移反应中 2 价散射离子与 i 价反冲离子的符合性计数, η^i 为 i 价态下反冲离子的探测效率, I 为入射离子束强度, N 为单位体积内

的气体靶原子数, L 为碰撞区靶气体的有效长度, T 为碰撞后反冲离子能够到达探测器的传输效率.绝对截面的误差主要来自统计误差(2%—17%)归一化误差(10%)和其他误差(10%以内).文中若无特别说明,各参数均采用原子单位.

3. 实验结果及分析

图 1—图 3 分别给出了 C^{3+} 与 He, Ne, Ar 原子碰撞过程中的单电子转移截面的实验值和 n CTMC 程序计算值. n CTMC 方法基于独立粒子框架结合经典力学和能量统计理论来描述全裸离子与靶原子(或离子)间的反应,入射离子与靶电子、靶电子与靶核之间通过库仑势相互作用,且遵循牛顿运动定律,计算时不考虑入射离子中 3 个电子对核的屏蔽作用(反屏蔽作用)以及反应中电子间的关联效应.在 n CTMC 计算中,靶电子相对靶核在椭圆轨道上运行的初始位置随机给定,再转化为直角坐标系下的位置分量和动量分量,然后用哈密顿方程求得经过一个给定时间 Δt 后每个粒子的动量和位置以及在每一时刻相对于靶核和相对于入射核的总能.当电子相对靶核的总能大于零时,该电子将逃离靶原子,此时若电子相对于入射核的总能小于零,则被入射离子俘获,否则便被电离成为自由电子.如果电子没有逃离靶原子,随着时间的推移各电子能量进一步累积.如果所有剩余电子能量的总和满足最外面电子的出射,则最外面电子俄歇逃离靶核束缚,然后再用上面所述的方法来判断它是被俘获还是被电离.最后根据耦合情况求出各种反应截面.

由于 Ne 原子核和 Ar 原子核对其内壳层(Ne 为 K 壳层, Ar 为 L 壳层和 K 壳层)的电子束缚得很紧,在本文实验的能区,发生内壳层电离和共振俘获的概率与最外层电子电离和共振俘获的概率相比很低,因此 n CTMC 计算时只考虑了 Ne 原子和 Ar 原子最外层的 8 个电子.计算中 C^{3+} 与 Ne 原子和 Ar 原子碰撞时的最小碰撞参数 b_{\min} 分别根据靶原子的内壳层轨道半径选定,屏蔽常数用类氢方法计算.

用 n CTMC 程序进行计算时,入射离子的电荷 $q = 3$, 循环次数 $n_{\text{cycle}} = 50000$.多体数 n 、两核碰撞的起始距离 r_{start} 、终止距离 r_{stop} 、最大碰撞参数 b_{\max} 、最小碰撞参数 b_{\min} 的取值如下:对于 He 靶, $n = 4$, $r_{\text{start}} = r_{\text{stop}} = 15.0$, $b_{\max} = 12.0$, $b_{\min} = 0.0$; 对于 Ne 靶, $n = 10$, $r_{\text{start}} = r_{\text{stop}} = 6.8$, $b_{\max} = 4.6$, $b_{\min} = 0.3$; 对于 Ar

靶, $n = 10$, $r_{\text{start}} = r_{\text{stop}} = 12.0$, $b_{\text{max}} = 5.8$, $b_{\text{min}} = 0.6$.

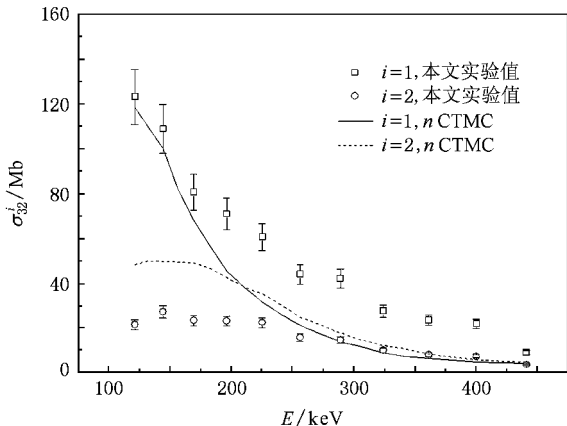


图 1 C^{3+} 与 He 原子碰撞过程中的单电子转移绝对截面的实验值和 n CTMC 计算值

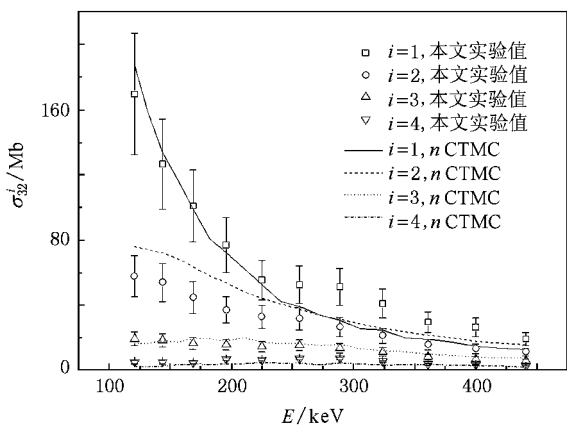


图 2 C^{3+} 与 Ne 原子碰撞过程中的单电子转移绝对截面的实验值和 n CTMC 计算值

从图 1—图 3 可以看出,受极化作用的影响,当入射离子的单核子能量 E 在 72—100 keV 时 C^{3+} 与 Ar 原子反应的 SC 截面(见图 3)实验值大于计算值,约为计算值的 1.8—2.1 倍.当 E 大于 120 keV 时, C^{3+} 与 He, Ne, Ar 原子反应的 SC 截面先是与计算值符合很好,然后受电子间动态关联效应的影响,随入射离子能量的上升实验值逐渐大于计算值.

对于 TI-1,当入射离子的单核子能量 E 小于 100 keV 时,一方面因 n CTMC 不能计算入射离子多电子关联态俘获形成的 TI-1 截面,另一方面受极化效应影响,使 C^{3+} 与 Ar 原子碰撞过程中 TI-1 截面的实验值大于计算值.随着 E 的增大,入射离子多电子关联态俘获对转移电离的影响减小, TI-1 由入射离子与靶电子多次独立作用形成,从而使实验值与计算值在趋势上逐渐相符.在 n CTMC 计算中,因超

估了反应中的径向动量转移,忽略了激发态离子的辐射退激,使计算截面大于实验截面.然而,随入射离子速度的增大,被俘获电子对入射离子的屏蔽作用减小,发生电离时实际的入射离子电荷 q_r 随能量的增大而增大,大于 n CTMC 中的计算电荷 q_c ($q_c = q - 1$).再加上电子间动态关联效应的增强,实验截面随入射离子能量的增大逐渐接近甚至大于计算值.这在图 1—图 3 中可以明显地看出.

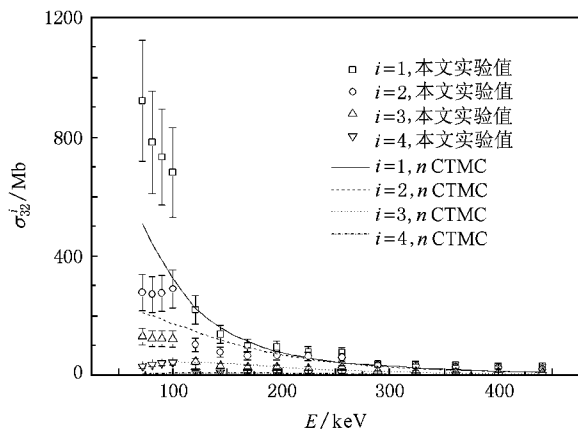


图 3 C^{3+} 与 Ar 原子碰撞过程中的单电子转移绝对截面的实验值和 n CTMC 计算值

C^{3+} 与 Ne, Ar 原子的反应中 TI-2 截面和 n CTMC 计算截面符合很好, TI-3 截面基本上大于计算值.这一方面是由于形成转移多电离的反应过程中实际电荷与计算电荷上的差距,另一方面是由于反应中入射离子有效电荷的变化.根据过垒模型,发生转移电离时入射离子俘获一个靶电子后的电离反应发生在俘获半径 r_c [13, 14] 内,且电离半径 r_i^i 随着靶原子被电离的重数 i ($i = 2, 3, 4$) 的递增逐级减小,即 $r_1^4 < r_1^3 < r_1^2 < r_c$.根据文献 [15, 16] 的讨论,有效电荷 $q_{\text{eff}}^4 > q_{\text{eff}}^3 > q_{\text{eff}}^2 > q$.因俘获发生在小碰撞参数(大动量转移)处,有效电荷的变化不是很显著,实验截面并没有比 n CTMC 计算截面大很多.

形成转移电离的机制主要有以下几种:一是独立多步作用过程,单次俘获或电离过程都是由入射离子与靶电子独立作用的结果.二是震离过程,单电子俘获后的靶离子从初始关联波函数弛豫时发射电子形成转移电离.三是类托马斯过程,入射离子先与靶电子发生反应,接着电子间相互作用导致转移电离.四是能量很低时,入射离子与靶原子相互作用过程中形成的准分子自电离形成转移电离.五是入射离子多电子俘获到激发态后自电离形成转移电离.

在本文实验的能区,转移电离主要是由第一和第五两种机制形成,但具体某种机制的贡献有多大,目前还没有一个可靠的理论可以进行计算.从绝对截面随入射离子的单核子能量 E 变化的关系并不能看出 C^{3+} 与 He, Ne, Ar 原子相互作用时两种机制的贡献大小,但是转移电离与 SC 的截面比 R^k 随能量的关系可以说明这一点.

$$R^k = \frac{\sigma_{32}^i}{\sigma_{32}^j} \quad (k = 2, 3, 4). \quad (7)$$

根据独立电子近似^[17],离子与原子碰撞过程中,在碰撞参数 b 处发生 m 重俘获 n 重电离的概率 $P_{m,n}(b)$ 可以表示为

$$P_{m,n}(b) = \binom{N}{m} \binom{N-m}{n} [1 - P_c(b) - P_i(b)]^{N-m-n} P_c^m(b) P_i^n(b), \quad (8)$$

式中 N 为靶原子某壳层(在本文中,对于 He 原子指 K 层;对于 Ne 原子指 L 层;对于 Ar 原子指 M 层)上的活性电子总数, m 是被俘获的靶电子数, n 是被电离的靶电子数. $P_c(b)$ 和 $P_i(b)$ 分别是碰撞参数 b 处靶原子上某壳层单个活性电子的俘获概率和电离概率.如果单个电子的俘获概率和电离概率用俘获半径 r_c 内的平均俘获概率 \bar{P}_c 和平均电离概率 \bar{P}_i 来代替,那么单电子转移截面可表示为

$$\sigma_{32}^i = 2\pi \int_0^{r_c} b db \binom{N}{1} \binom{N-1}{i-1} \times (1 - \bar{P}_c - \bar{P}_i)^{N-i} \bar{P}_c \bar{P}_i^{i-1}. \quad (9)$$

俘获截面的表达式为

$$\sigma_{32}^1 = 2\pi \int_0^{r_c} b db \binom{N}{1} \bar{P}_c (1 - \bar{P}_c - \bar{P}_i)^{N-1}. \quad (10)$$

根据(9)(10)式, R^k 可以表示为

$$R^k = \left[\binom{N-1}{i-1} (1 - \bar{P}_c - \bar{P}_i)^{N-i} \bar{P}_c \bar{P}_i^{i-1} \right]. \quad (11)$$

图4给出了 C^{3+} 与 He, Ne, Ar 原子反应过程中 TI-1 与 SC 的截面比 R^2 随入射离子能量的变化关系.从图4可以看出,在入射离子能量相对较低的区域, R^2 随能量 E 基本呈线性变化关系.这说明在低能时入射离子双电子俘获到高激发态后自电离形成的转移电离对总的 TI-1 截面的贡献相对较小.

图4中还给出了 Shah 等^[21]测量得到的 Li^{3+} 与 He 以及 Kirchner 等^[81]测量的 C^{3+} 与 Ne 作用时 TI-1 与 SC 的截面比,虽然这两组数据与本文的实验数据间存在差异,但在低能区呈现出的变化关系与本文的实验测量结果在趋势上基本一致.

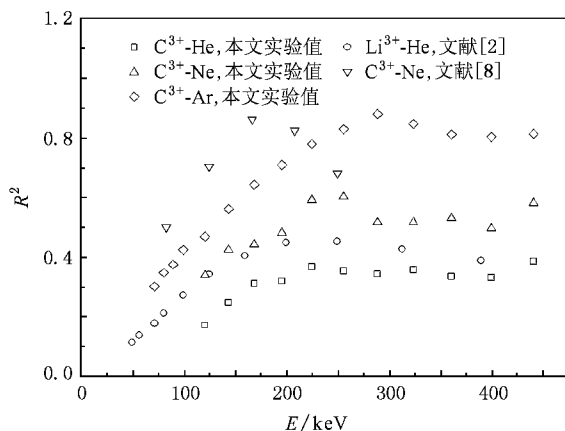


图4 实验得到的 C^{3+} 与 He, Ne, Ar 原子碰撞过程中 TI-1 与 SC 的截面比

图5给出了本次实验转移多电离与 SC 的截面比 R^3 和 R^4 .对于 Ne 靶,转移多电离和转移单电离一样,主要是由入射离子与靶原子的多次独立作用形成的^[18].但对于 Ar 原子,情况就不同.从图5可以看出, C^{3+} 分别与 Ne, Ar 原子相互作用时, R^3 在趋势上是基本一致的,但两者的 R^4 却不同.当能量较小时,因入射离子能量低,不足以形成 Ar 原子 L 壳层空位,转移多电离只能通过入射离子与靶原子间的多次作用形成.随着能量的升高, Ar 原子的 L 壳层电子参与到反应中,转移多电离则由内壳层空穴通过发射俄歇电子退激时形成.

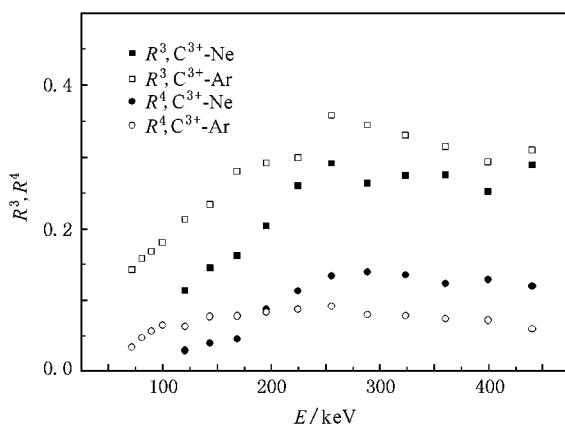


图5 实验得到 C^{3+} 与 Ne, Ar 原子碰撞过程中转移多电离与 SC 的截面比

4. 结 论

本文实验测量了中低速 ($1.7v_0$ — $4.2v_0$) C^{3+} 与

He, Ne, Ar 原子相互作用过程中单电子转移绝对截面, 并将实验测量结果与 n CTMC 计算结果作了比较. 当入射离子速度在 $1.7v_0$ — $2.0v_0$ 时, 由于 n CTMC 不能计算入射离子多电子关联态俘获后自电离形成的转移电离截面以及受极化作用的影响, C^{3+} 与 Ar 原子碰撞过程中的 SC 和 TI 截面大于 n CTMC 计算值. 在 $2.2v_0$ — $4.2v_0$ 时, SC 截面因受电子间动态关联的影响, 实验值先是与计算结果符合很好, 而后逐渐大于计算值; 对于 TI-1 过程, 因 n CTMC 计算时超估了反应中的径向动量转移, 没有考虑多电子俘获后的辐射退激, 使 TI-1 截面在数值上小于 n CTMC 计算值. 同时, 由于受电子间的动态关联和被俘获电子对入射离子的不完全屏蔽影响, 随入射离子速度的增大, TI-1 截面的实验值逐渐接

近甚至大于计算值. 随着电离重数的增加, 反应中有效电荷增大, TI-2 截面与 n CTMC 计算截面符合很好. 随着有效电荷的进一步递增, TI-3 截面大于 n CTMC 计算值.

在本文的实验能区, TI-1 和 TI-2 主要是由入射离子与靶原子间的多次相互作用引起的. TI-3 机制随靶原子不同而不同. 对于 Ne 原子, 因 K 壳层电子被束缚得很紧不能参加反应, TI-3 主要是由入射离子与靶的多次作用形成. 对于 Ar 原子, 当入射离子速度接近 L 壳层电子的轨道速度时, 内壳层空穴俄歇退激是形成转移电离的另一个途径.

感谢李兰亭工程师、陈子纯工程师在 2×1.7 MV 串列加速器的运行和维护上给予的协助.

- [1] Damsgaard H, Haugen H K, Hvelplund P, Knudsen H 1983 *Phys. Rev. A* **27** 112
- [2] Shah M B, Gilbody H B 1985 *J. Phys. B* **18** 899
- [3] Mann R 1987 *Phys. Rev. A* **35** 4988
- [4] Melo W S, Sant'Anna M M, Santos A C F, Sigaud G M, Montenegro E C 1999 *Phys. Rev. A* **60** 1124
- [5] Cai X H, Yu D Y, Cao Z R, Lu R C, Yang W, Shao C J, Chen X M 2004 *Chin. Phys.* **13** 1679
- [6] Cao Z R, Cai X H, Yu D Y, Yang W, Lu R C, Shao C J, Chen X M 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 2943 (in Chinese) [曹柱荣、蔡晓红、于得洋、杨威、卢荣春、邵曹杰、陈熙萌 2004 物理学报 **53** 2943]
- [7] Langereis A, Nordgren J, Blinman S, Cornille M, Bruch R, Phaneuf R A, Schneider D 1999 *Phys. Rev. A* **60** 2917
- [8] Kirchner T, Santos A C F, Luna H, Sant'Anna M M, Melo W S, Sigaud G M, Montenegro E C 2005 *Phys. Rev. A* **72** 012707
- [9] Ma X W, Zhu X L, Liu H P, Li B, Zhang S F, Cao S P, Feng W T, Xu S Y 2008 *Sci. China G* **38** 1 (in Chinese) [马新文、朱小龙、刘惠萍、李斌、张少锋、曹士聘、冯文天、许慎跃 2008 中国科学 G **38** 1]
- [10] Zhu X L, Ma X W, Li B, Liu H P, Chen L F, Zhang S F, Qian D B, Feng W T, Cao S P, Sha S, Zhang D C 2006 *Chin. Phys. Lett.* **23** 587
- [11] Cai X H, Chen X M, Shen Z Y, Liu Z Y, Ma X W, Liu H P, Hou M D 1996 *Nucl. Instrum. Meth. B* **114** 208
- [12] Chen X M, Lu Y X, Ding B W, Fu H B, Cui Y, Shao J X, Zhang H Q, Gao Z M 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 4461 (in Chinese) [陈熙萌、鲁彦霞、丁保卫、付宏斌、崔莹、邵剑雄、张红强、高志民 2007 物理学报 **56** 4461]
- [13] Hvelplund P, Haugen H K, Knudsen H 1980 *Phys. Rev. A* **22** 1930
- [14] Knudsen H, Haugen H K, Hvelplund P 1981 *Phys. Rev. A* **23** 597
- [15] Toburen L H, Stolterfoht N, Ziem P, Schneider D 1981 *Phys. Rev. A* **24** 1741
- [16] McGuire J H, Stolterfoht N, Simony P R 1981 *Phys. Rev. A* **24** 97
- [17] McGuire J H, Weaver L 1977 *Phys. Rev. A* **16** 41
- [18] Liu H P, Chen X M, Liu Z Y, Gao Z M, Liu Y W, Du J, Zhang H Q, Shun G Z, Wang J, Xi F Y, Wang Y 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 4856 (in Chinese) [刘会平、陈熙萌、刘兆远、高志民、刘玉文、杜娟、张红强、孙光智、王俊、席发元、王媛 2008 物理学报 **57** 4856]

Measurement of single-electron transfer cross sections in collisions of C^{3+} with He , Ne , Ar atoms at low to intermediate velocity *

Liu Hui-Ping^{1,2)} Chen Xi-Meng^{1)†} Liu Zhao-Yuan¹⁾ Ding Bao-Wei¹⁾ Shao Jian-Xiong¹⁾ Cui Ying¹⁾
Lu Yan-Xia¹⁾ Gao Zhi-Min¹⁾ Liu Yu-Wen¹⁾ Du Juan¹⁾ Sun Guang-Zhi¹⁾ Xi Fa-Yuan¹⁾
Wang Xing-An¹⁾ Lou Feng-Jun¹⁾

1) *School of Nuclear Science and Technology , Lanzhou University , Lanzhou 730000 , China)*

2) *School of Energy and Power Engineering , Xi'an Jiaotong University , Xi'an 710049 , China)*

(Received 24 December 2007 ; revised manuscript received 6 June 2008)

Abstract

Absolute cross sections for single-electron transfer of He , Ne , Ar atoms induced by C^{3+} at low to intermediate velocity ($1.7v_0—4.2v_0$) were measured and calculated using n -body classical trajectory Monte Carlo (n CTMC) method. Though good overall agreements are achieved between experimental and n CTMC results , certain differences are found. Because of the existence of polarization and the n CTMC being unable to calculate the multi-electron correlation capture cross sections , the experimental results are greater than those of n CTMC at low velocities ($1.7v_0—2.0v_0$). When the velocity of the projectile is higher ($2.2v_0—4.2v_0$) , the captured electron 's partial screening of the projectile , the electron-electron dynamic correlation and the effective charge are taken into account in interpreting the qualitative differences between theoretical and experimental results. In addition , the cross section ratios of transfer ionization to single electron capture are presented and the mechanism of transfer ionization are discussed.

Keywords : ion-atom collision , single-electron transfer , absolute cross section

PACC : 3470

* Project supported by the Special Foundation for State Major Basic Research Program of China (Grant No. 2002CCA00900) and the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10704030).

† E-mail : chenxm@lzu.edu.cn